

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**



376/333

JAPAN  
GROUP... 324  
CLASS... 176...  
RECORDED

JA 197 609  
① 日本国特許庁

# 公開特許公報

(2,000円)

特

許

願

8 (特許法第38条ただし書の)  
規定による特許出願  
昭和 50 年 3 月 19 日

特許庁長官 殿

発明の名称 多層被覆炭素粒子を用いた制御棒

特許請求の範囲に記載された発明の数( 3 )

発明者

住所 茨城県日立市幸町3丁目1番1号

株式会社日立製作所 日立工場内

氏名 平川 博 将

特許出願人

住所 東京都千代田区丸の内一丁目5番1号

名称(510)株式会社日立製作所

代表者 吉山 博 吉

代理人

住所 東京都千代田区丸の内一丁目5番1号

株式会社日立製作所内

電話東京 270-2111(大代表)

氏名(6189)弁護士 高橋 明

①特開昭 51-108197

④公開日 昭51.(1976) 9.25

②特願昭 50-32332

②出願日 昭50.(1975) 3.19

審査請求 未請求 (全5頁)

庁内整理番号

6767 23

⑤日本分類

136 B421

⑤ Int. Cl<sup>3</sup>

G21C 7/10

84261X/45

K05

HITA 19.03.75

K(5-B6A).

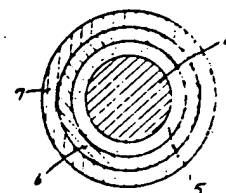
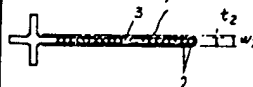
HITACHI KK

\*J5 1108-197

19.03.75-JA-032332 (25.09.76) G21c

Fuel control rod contg. multilayer coated absorbing grains - to improve control efficiency and smooth core powder density

Control rod contg. multilayer coated grains for improving the control efficiency and smoothing the core power density. Each grain is made of a spherical absorbing nucleus of  $B_4C$ , is coated with a first layer of thermally decomposed carbon of low density for a buffer layer, then with a second layer of a metal nitride or carbide, and finally a third layer of a high density thermally decomposed carbon. The grains formed are charged in a sheath to form a fuel rod. The first layer serves for absorbing a recoil nucleus due to nuclear transformation from the nucleus to avoid the damage of the second and third layers.



J5 1108197/27

- 2、第2層をさらに被覆する熱分解炭素よりなる第3層を、最外層とする特許請求の範囲第1項記載の多層被覆炭素粒子を用いた制御棒。
- 3、炉心への挿入開始後、即座に多大な中性子吸収をなし、かつ、挿入時に炉心の出力密度分が一様になるように制御棒の軸方向に配置され

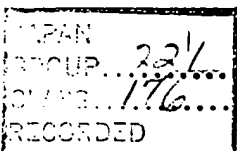
スによる内圧に耐えるためには一定の厚さを確保する必要があり、必然的にB、C粉末の充填量が減少して制御効果が低下することになる。

第1図は従来用いられる十字形制御棒の部分断面図であり、図において1はシース、2はアプローバ・チューブでブレードの巾Wは7.9mmシ

327  
333



176/86R

J. 197609  
① 日本国特許庁

## 公開特許公報

(2,000円)

8

(特許法第38条ただし書の)

① 特開昭 51-108197

## 明 細 書

発明の名称 多層被覆吸収材粒子を用いた制御棒

## 特許請求の範囲

- 1、中性子の吸収断面積が50 barn以上の元素であり、この元素の酸化物、炭化物、窒化物からなるグループの中の少くとも一つの化合物よりなる球状の吸収材核と、この吸収材核を被覆する熱分解炭素よりなる第1層と、さらにこの第1層を被覆し、酸化、炭化もしくは窒化物の標準生成時に負の自由エネルギーをもつた金属の酸化物、炭化物および窒化物からなるグループの中の少くとも一つの化合物よりなる第2層とよりなる多層被覆吸収材粒子を用いた制御棒。
- 2、第2層をさらに被覆する熱分解炭素よりなる第3層を、最外層とする特許請求の範囲第1項記載の多層被覆吸収材粒子を用いた制御棒。
- 3、炉心への挿入開始後、即座に多大な中性子吸収をなし、かつ、挿入時に炉心の出力密度分が一様になるように制御棒の軸方向に配置され

た特許請求の範囲第1項記載の多層被覆吸収材粒子を用いた制御棒。

## 発明の詳細な説明

本発明は原子炉の制御棒に係り、特に中性子吸収材として多層の被覆吸収材粒子を用いた制御棒に関する。

従来の原子炉用制御棒はステンレス製アブソーバ、チューブに炭化ボロン（以下B、Cと呼称）粉末をペレット状にして封入し、これを一定形状のステンレス製シースに収納したものである。この方式では炉心出力密度の上昇に伴つて、そのスペースが制御棒の占める容積に制約を与えるのでこれを薄くする必要があるがアブソーバ・チューブはB、Cが中性子を受けて発生するヘリウムガスによる内圧に耐えるためには一定の厚さを確保する必要があり、必然的にB、C粉末の充填量が減少して制御効果が低下することになる。

第1図は従来用いられる十字形制御棒の部分断面図であり、図において1はシース、2はアブソーバ・チューブでブレードの巾Wは7.9mmシ

327  
333

ス1の板厚は1.4mmであつた。しかし、上記のような要求によりこれが第2図のように反映されてブレードの巾W<sub>1</sub>は6.6mm、シース1の板厚は0.8mmとしてアブソーバ・チューブの外径はいづれの場合も4.6mmを確保している。このように要求がシビアになつた第2図の場合は、シース1の薄肉化に対処して、その剛性を保つようにスティフナ3を挿入したためアブソーバ・チューブ2の本数は、第1図の場合の84本から第2図は80本と約5%減少しており、当然制御棒1本当りの制御効率も低下している。

また、従来からの要求である炉心出力密度の平滑化には制御パターンのみによつては限界があり、制御棒そのものの形状を変える以外に対策がないが、従来のアブソーバ・チューブはB、C粉末を充填した円筒形であるという幾何学的形状の制約から収納するシースを特殊な形状とするしかなく、その改良には多大の困難性を伴う。

本発明の目的は制御効率を向上し、さらに炉心出力密度を平滑化し得る多重被覆吸収材粒子を用

いた制御棒を提供するにある。

本発明の特徴は中性子の吸収断面積が50 barn以上の元素であり、この元素の酸化物、炭化物、窒化物からなるグループの中の少くとも一つの化合物よりなる球状の吸収材核と、この吸収材核を被覆する熱分解炭素よりなる第1層と、さらにこの第1層を被覆し、酸化、炭化もしくは窒化物の標準生成時に負の自由エネルギーをもつた金属の酸化物、炭化物および窒化物からなるグループの中の少くとも一つの化合物よりなる第2層とよりなる多重被覆吸収材粒子を用いた制御棒にある。

本発明の他の特徴は、第2層をさらに被覆する熱分解炭素よりなる第3層を最外層とする上記の多重被覆吸収材粒子を用いた制御棒にある。

本発明のさらに他の特徴は、炉心への挿入開始後、即座に多大な中性子吸収をなし、かつ、挿入時に炉心の出力密度分布が一樣になるように制御棒の軸方向に配置された<sup>特徴の</sup>第一に記載の多重被覆吸収材粒子を用いた制御棒にある。

材核のスエリング（膨張）、外層の照射効果による収縮の緩衝の役目を果す。この緩衝層5の密度は0.9～1.2g/cm<sup>3</sup>である。

緩衝層6（第2層）には例えばSiC層を用い、その密度は3.22g/cm<sup>3</sup>で、引張強さは1700kg/cm<sup>2</sup>である。

今、吸収材核4に、B、C（ボロンカーバイド）を用い、B、C核の粒径を300μ、第1層5、第2層6、第3層7の厚みをそれぞれ35、20、20μとすればB、Cについてはボロン10のボロン中の天然存在比は約0.19であり、また、中性子がボロン10核に照射されて、Li（リチウム）に変換される反応（<sup>10</sup>B(n, α)Li反応）により、B、Cで本来保持されるべき発生He（ヘリウム）の大気への放出率は8.61%、B、Cの密度が2.38g/cm<sup>3</sup>、モル分子量が55.26であるからこの粒子における<sup>10</sup>B（ボロン10）の原子数は

$$0.19 \times 4 \times \frac{4}{3} \pi (150 \times 10^{-4})^3 \times 238 / 55.26 = 4.63 \times 10^{-7} \quad (\text{原子当量})$$

本発明の多重被覆粒子の断面図を第3図に示す。粒径が200～300ミクロンのB、Cなどからなる球状吸収材核4に、まづ、緩衝層として例えば低密度の熱分解炭素5を数十ミクロン（第1層）ついで窒化または炭化金属層36を数十ミクロン（第2層）、さらに、高密度の熱分解炭素7を数十ミクロン（第3層）というように、吸収材核4の表面に次々に多重被覆して、数百ミクロンの多重被覆粒子を製作する。

この場合、球状吸収材の核は粉末冶金法、ゾルゲル法等によつて容易に製作可能であり、熱分解炭素、炭化金属層の被覆層の製法も流動層などを用いて、従来の核燃料被覆技術で実証済である。

さて、緩衝層5（第1層）の低密度熱分解炭素の層は、理論密度50%以下の等方性炭素であり、多孔質であるため、吸収材核からの核変換による反跳核を吸収して、第2層6、第3層7等の破損を防ぎ、また、核変換ガスのブレンラム（貯留空間）の役目をして、多重被覆粒子自体の内圧の増加を防ぐ。また、この層は核変換ガスに起因する吸収

となり、この内圧増加によつて、  
最大引張応力は  
 $\sigma = 205 / 185 - 1.11$   
であるから、  
 $\sigma = 1.11 - Pa(k^2 + 2) / 2$   
 $3.36 / (2 \times 0.36)$

れる窒化物がある。

一方、緩衝層6（第2層）は、B、CもしくはBN、下の酸化物、炭化物、窒化物、自由エネルギーをもつた炭素らは生成するのは容易でと炭素との両立性（安定）ことはこれら化合物が、とからも明白であり、これは炭素または窒素が活性で反応を起せばよい訳で、炭素の被覆には、原料メタンの混合ガスを、メルトリクロル・シランすなわち、これらの金属化合物VC、ZrC、WC、MoC、TiN、ZrC、Ta<sub>2</sub>Nなど窒化物を整理して表示する。

となり、

放出ヘリウムのモル数は

$$4.627 \times 10^{-7} \times 0.0861 = 3.98 \times 10^{-8} \text{ mol/g}$$

となる。このHeが緩衝層に貯えられるものとするれば、この層の理論密度を5.0とすれば有効体積は

$$0.5 \times \frac{4}{3} \pi (185^2 - 150^2) \times 10^{-3} = 6.19 \times 10^{-6} \text{ (cm}^3\text{)}$$

であるからこれによる内圧増加は、発生ガスを完全ガスとみて、使用状態の351℃において

$$P_a = 3.98 \times 10^{-8} \times 84.8 \times 624 / 6.19 \times 10^{-6} = 340.2 \text{ (kg/cm}^2\text{)}$$

となり、

この内圧増加によつて、第2層6の内表面にかかる最大引張応力は

$$k = 205 / 185 = 1.11 \text{ (外径/内径)}$$

であるから、

$$\sigma_{\max} = P_a (k^2 + 2) / 2 (k^2 - 1) = 340.2 \times 3.36 / (2 \times 0.36) = 1588 < 1700 \text{ (kg/cm}^2\text{)}$$

れる窒化物がある。

一方、緩衝層6(第2層)として適定する材料は、B<sub>4</sub>CもしくはBNと同程度もしくはそれ以下の炭化物、炭化物、窒化物の標準生成時の自由エネルギーをもつた金属の化合物であり、これらは生成するのは容易ではないが、一度生成すると炭素との両立性(安定性)は抜群である。このことはこれら化合物が耐火材として用いられることから明白であり、これら化合物を生成するには炭素または窒素が活性な状態(裸の原子状態)で反応を起せばよい訳で流動層を用いたり、熱分解炭素の被覆には、原料ガスとして不活性ガスとメタンの混合ガスを、また、SiC被覆にはメチル・トリクロロ・シラン(CH<sub>3</sub>SiCl<sub>3</sub>)を用いる。すなわち、これらの金属化合物としてはSiC、TiC、VC、ZrC、WC、MoC、TaCなど炭化物およびTiN、VN、ZrN、TaCNなど窒化物が考えられる。

これらを整理して表示すれば第一表のようになる。

となり安全である。

本計算では内圧によるSiCの膨張に基因する

ブレナムの有効体積の増加や第3層7を無視した

が、高密度熱分解炭素は1.8~2.3 g/cm<sup>3</sup>の密度をもち、引張強さが25.0 kg/cm<sup>2</sup>以上であるから、この点を考慮すれば本計算により安全側の計算である。

第2層6は窒化または炭化金属層であり、不純物の核変換金属原子を保持するのにも効果がある。

さらに、第3層7も熱分解炭素の薄い層からなっており、この熱分解炭素のシース材であるSUJ304との両立性(接触による物質移動性)は十分であり、使用温度(351℃)では浸炭は起らない。

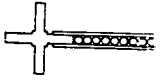
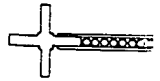
さて、球状の中性子吸収材核4に用いるものは、吸収断面積、(単位barn)が50以上の元素からなり、高温でも安定なこの元素の炭化物、炭化物または窒化物を生成する。これらには、B<sub>4</sub>O<sub>3</sub>、CdO、Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、HfO<sub>2</sub>、Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>などの炭化物、B<sub>4</sub>C、HfCなどの炭化物、BNに代表さ

第 1 表

層	材 料
吸収材核	B <sub>4</sub> C、HfC BN B <sub>4</sub> O <sub>3</sub> 、CdO、Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 、Sm <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 、 HfO <sub>2</sub> 、Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
第1層(緩衝層)	熱分解炭素
第2層(緩衝層)	SiC、TiC、VC、ZrC、WC、MoC、 TaC TiN、VN、ZrN、TaCN
第3層(緩衝層)	熱分解炭素

第4図~第6図は本発明の多重被覆粒子を用いて作成したブレードの形状を示す。このブレードは十字形断面の一つの翼の形状を軸方向に転写して示したものである。

原子炉における制御棒の役目は大別して(1)スクラム、(2)起動時の反応度余裕、(3)出力密度分布の平滑化にある。(1)、(2)の場合には、制御棒は中性子毒としての作用を効果的に短時間に行なうことが望ましく、従来のBWRの制御棒駆動が約2秒



ノ1ノッチという事を考えると、この目的のためには、第4図のようなブレードの形状をもち、挿入開始後に即座に多大な中性子吸収作用(中性子吸収)を行なう制御棒が有効である。

(3)の場合には燃料に対する負荷の軽減のためには理想的には出力密度分布と同一形状のブレードをもつ制御棒が有効であり、BWRの出力密度分布は、第5図のように軸方向に分布するのでこれと同一形状の制御棒が有効である。そこでこれら両者の性質を兼備した制御棒として第6図の形状のブレードをもつ制御棒が考えられる。

すなわち、本発明の被覆粒子を用いれば被覆層が圧力容器の役割をするため吸収材(例えばB、C)より放出される核変換ガスは、多層被覆粒子の内部に保持され外部に放出されないから、被覆粒子をブレード(シース)に直接収納できるのでシースの形状を変えて耐水密封構造に容易に製作できる。

本発明の多層被覆粒子を従来と同寸法のシースへ直接に充填したとすれば、シースの1ブレード

の容積は、実施例の場合 $1920\text{ cm}^3$ となり、この粒子がブレード内に最も充填されたとすれば1ブレード内に納まる粒子数は $8.4 \times 10^7$ 個、充填B、C重量は約2800gとなり、従来の1ブレード当りの充填量約1320gよりはるかに充填できる。換言すればシースの厚さをその分だけ減少できるわけである。

一方、第6図のような制御棒を製作するには第7図に示すように従来のアブソーバ・チューブ封入方式ではアブソーバ・チューブの寸法を変えていつて、所定の形状に成形するよりないが、上記の多層被覆粒子を用いた制御棒では任意の形状のものが容易に製作できて、製作工数の大巾な低減が可能となる。

また、この制御棒中には多層被覆粒子の被覆層として減速材である熱分解炭素が使用されており、従来の黒体としての制御棒よりも燃料の出力ピーキングを抑える効果のある事は明白であり、熱分解炭素の中性子減速効果により吸収材原子(例えば $^{235}\text{U}$ 、B)の吸収断面積が増大する。

また、従来型の制御棒を製作する場合にもB、C粉末、満球をアブソーバ・チューブ1本、1本に充填・封入するという面倒は作業が省略でき、単に所定形状のシースに直接、上記の多層被覆粒子を収納するだけでよいので製作工数の大巾な低減が期待できる。

図面の簡単な説明

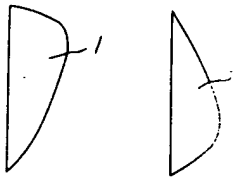
第1図は従来の沸騰水型原子炉の制御棒の四分の一断面図。

第2図は同じく新型制御棒の断面図。第3図は、本発明の多層被覆粒子の断面図。第4図は原子炉のスクラム、起動時に有効と考えられる制御棒のブレード形状図。第5図は原子炉の炉心出力密度分布の平滑化に有効な制御棒のブレードの形状図。第6図は同じく第4図と第5図を重ねたブレードの形状図。そして第7図は第6図の形状のブレードを従来のアブソーバ・チューブ封入方式にした模式図である。

- 2 アブソーバ・チューブ
- 4 吸収材核
- 5 第一層
- 6 第二層
- 7 第三層

代理人 井理士 高橋明

第4図 第5図



第7図

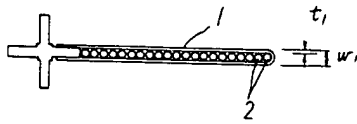


符号の説明

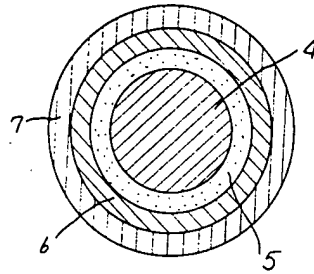
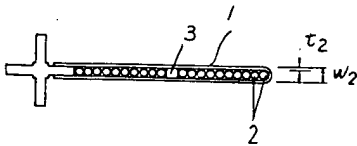
1 シース

第 1 図

第 3 図



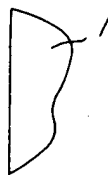
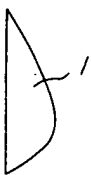
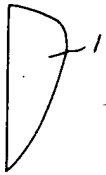
第 2 図



第 4 図

第 5 図

第 6 図



添附書類の目録

- |             |     |
|-------------|-----|
| (1) 明 細 書   | 1 通 |
| (2) 図 面     | 1 通 |
| (3) 要 旨 状 況 | 1 通 |
| (4) 特 許 願 本 | 1 通 |

前記以外の発明者、特許出願人または代理人

発 明 者

氏 名

氏 名

第 7 図

